

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 6 月 30 日 (30.06.2005)

PCT

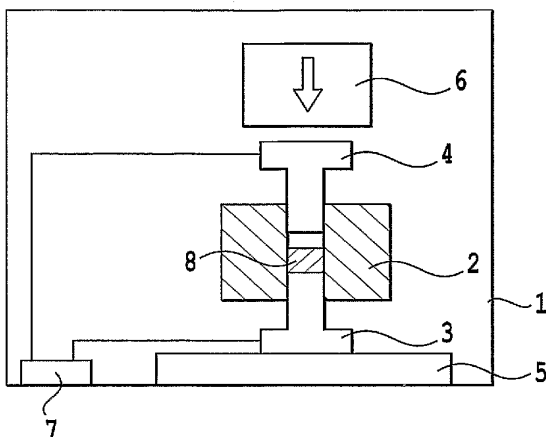
(10) 国際公開番号
WO 2005/059194 A1

- (51) 国際特許分類: C22C 49/14, 47/14, (72) 発明者; および
B22F 3/14, H01L 23/373 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 佐藤 公紀 (SATO, Kiminori) [JP/JP]; 〒6900816 島根県松江市北陵町 1 番地 島根県産業技術センター内 Shimane (JP). 尾添 伸明 (OZOE, Nobuaki) [JP/JP]; 〒6900816 島根県松江市北陵町 1 番地 島根県産業技術センター内 Shimane (JP). 小川 仁一 (OGAWA, Jinichi) [JP/JP]; 〒6900816 島根県松江市北陵町 1 番地 島根県産業技術センター内 Shimane (JP). 上野 敏之 (UENO, Toshiyuki) [JP/JP]; 〒6900816 島根県松江市北陵町 1 番地 島根県産業技術センター内 Shimane (JP). 小松原 聡 (KOMATSUBARA, Satoshi) [JP/JP]; 〒6900816 島根県松江市北陵町 1 番地 島根県産業技術センター内 Shimane (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/018823
- (22) 国際出願日: 2004 年 12 月 16 日 (16.12.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2003-421619
2003 年 12 月 18 日 (18.12.2003) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 島根県 (SHIMANE PREFECTURAL GOVERNMENT) [JP/JP]; 〒6908501 島根県松江市殿町 1 番地 Shimane (JP).
- (74) 代理人: 谷 義一 (TANI, Yoshikazu); 〒1070052 東京都港区赤坂 2 丁目 6-2 O Tokyo (JP).

[続葉有]

(54) Title: METAL BASE CARBON FIBER COMPOSITE MATERIAL AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 金属基炭素繊維複合材料およびその製造方法



(57) Abstract: A process in which while inhibiting the formation of metal carbide, there is produced a metal base carbon fiber composite material that is lightweight, having high thermal conductivity and that is capable of control of the direction of heat current. There is provided a process for producing a metal base carbon fiber composite material, comprising the step of performing physical mixing of carbon fibers and metal powder to thereby obtain a metal fiber mixture; the step of charging the metal fiber mixture, while effecting alignment thereof, in a jig; and the step of arranging the jig in the atmosphere, vacuum or an inert atmosphere and passing direct pulse current through the jig under pressure to thereby induce heat generation by which the metal fiber mixture is sintered. In this stage, the composite material contains 10 to 80 mass% of carbon fibers based on the total mass of composite material and is sintered up to 70% or more of the ideal density.

(57) 要約: 金属炭化物の生成を抑制しつつ、軽量で高熱伝導率を有し、かつ熱流の方向制御を可能とする金属基炭素繊維複合材料の製造方法を提供する。炭素繊維と金属の粉末とを物理的に混合して金属繊維混合物を得る工程と、金属繊維混合物を配列させながら治具中に充填する工程と、治具を大気中、真空中また

[続葉有]



WO 2005/059194 A1



(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ,

BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

は不活性雰囲気中に設置し、加圧しながら直接パルス電流を通電させ、それによる発熱で焼結をする工程とを含む金属基炭素繊維複合材料の製造方法。ここで、該複合材料は、複合材料の総質量を規準として10～80質量%の炭素繊維を含み、理想密度の70%以上まで焼結されている。

明 細 書

金属基炭素繊維複合材料およびその製造方法

技術分野

- [0001] 本発明は金属基炭素繊維複合材料に関する。より詳細には、常温から数百℃で作動する装置の放熱に適した高熱伝導率を有する金属基炭素繊維複合材料、およびパルス通電焼結法による金属基炭素繊維複合材料の製造方法に関する。

背景技術

- [0002] 従来、半導体を用いた電子装置またはパワーモジュールの放熱部材(基板、ヒートシンク、ヒートスプレッダなど)として、アルミニウムまたは銅のような熱伝導率が高い金属またはそれらの合金が用いられてきている。しかしながら、それら装置の高性能化に伴い、それらの発熱量が増大する傾向が顕著である。さらに、それら装置の小型軽量化に伴い、放熱部材の小型軽量化が求められてきている。
- [0003] この問題に関して、優れた熱伝導性を有し、かつ軽量である炭素繊維を用いた金属基炭素繊維複合材料が注目されてきている。そのような金属基炭素繊維複合材料は、炭素繊維から形成されるプレフォームに対して、アルミニウムなどの金属の溶湯を加圧または非加圧で含浸させる溶湯含浸法によって形成されるのが一般的である(特許文献1参照)。
- [0004] 溶湯含浸法によって金属基炭素繊維複合材料を形成する際の問題は、炭素繊維と溶湯中の金属との化学反応による金属炭化物の生成である。たとえば、溶湯中のアルミニウムと炭素繊維との反応による Al_4C_3 の生成がある。生成した Al_4C_3 などの炭化物は、常温における水または水蒸気との接触により、メタンなどの炭化水素ガスと金属水酸化物へと変質し、炭素繊維と母材(マトリクス)の金属との間に空隙が生じ、複合材料の強度および熱伝導率が大きく低下することが知られている。
- [0005] 溶湯含浸法における炭化物の形成を抑制するための方法として、セラミックコーティング(特許文献2参照)またはフッ素コーティング(特許文献3参照)のようなコーティングを炭素繊維に施す方法が検討されてきている。あるいはまた、炭素を主成分とするバインダー(ピッチ樹脂など)を用いて炭素繊維のプレフォームを形成する方法(特許

文献4参照)、または溶湯として用いる金属を合金化して溶湯の温度を低下させて溶湯含浸時の反応性を低下させること(特許文献5参照)が検討されてきている。

[0006] 特許文献1:特開2002-194515号公報

特許文献2:特開2001-300717号公報

特許文献3:特開平05-125562号公報

特許文献4:特開2000-303155号公報

特許文献5:特開平11-256254号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、前述のように炭素繊維にコーティングを施す方法および炭素を主成分とするバインダーによってプレフォームを形成する方法は、追加の工程および材料などを必要とし、複合材料のコストの増大を招く可能性がある。また、溶湯として合金を用いる方法においては、該合金を準備する工程が必要となる。さらに、いずれの方法においても、マトリクスとして用いる金属ないし合金を溶湯とするために高温が必要であり、多くのエネルギーを必要とする。

[0008] これに対して、本発明は、一般的に用いられている安価な原材料を用い、より小さなエネルギーによって実施可能であると同時に、炭化物の生成を抑制する金属基炭素繊維複合材料の製造方法、および該方法によって製造される金属基炭素繊維複合材料を提供しようとするものである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明の第1の実施形態である金属基炭素繊維複合材料は、金属と炭素繊維とを焼結させて得られる金属基炭素繊維複合材料であって、前記炭素繊維は前記複合材料の総質量を規準として10〜80質量%含まれ、前記複合材料は理想密度の70%以上まで焼結されていることを特徴とする。前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーからなる群から選択されてもよい。前記金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択することができる。また、該金属基炭素繊維複合材料は、金属としてアルミニウムまたはそれを

基とする合金を用いる場合には好ましくは $2.6\text{g}/\text{cm}^3$ 以下、金属として銅またはそれを基とする合金を用いる場合には好ましくは $6.8\text{g}/\text{cm}^3$ 以下、金属としてマグネシウムまたはそれを基とする合金を用いる場合には好ましくは $2.1\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の密度を有する。さらに、該金属基炭素繊維複合材料において、前記炭素繊維が配列されていてよい。その場合には、炭素繊維配列方向において $300\text{W}/\text{mK}$ 以上の熱伝導率を有することが望ましい。上記のような金属基炭素繊維複合材料を半導体を用いた電子装置またはパワーモジュールの放熱部材(基板、ヒートシンク、ヒートスプレッダなど)として用いてもよい。

- [0010] 本発明の第2の実施形態である金属基炭素繊維複合材料の製造方法は、炭素繊維と金属の粉末とを物理的に混合して金属繊維混合物を得る工程1と、前記金属繊維混合物を配列させながら、治具中に充填する工程2と、前記治具を大気中、真空中または不活性雰囲気中に設置し、加圧しながら直接パルス電流を通電させ、それによる発熱で焼結をする工程3とを特徴とする。前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーからなる群から選択されてもよい。前記金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択することができる。前記炭素繊維の繊維長が 100nm 〜 5mm である場合、工程1は、ボールミル等の物理的混合法を用いて実施することができる。あるいはまた、前記炭素繊維の繊維長が 5mm 以上である場合、工程1は適当な径の棒を伴うロッドミル等を用いる繊維方向を保持した物理的混合法によって実施することができる。好ましくは、前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維あるいはナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーと、気相成長炭素繊維またはカーボンナノチューブとの混合物であつてもよい。さらに、工程2において、前記炭素繊維の方向を2次元的に制御することも可能である。

発明の効果

- [0011] 以上のような構成を採ることによって、半導体を用いた電子装置またはパワーモジュールの放熱部材(基板、ヒートシンク、ヒートスプレッダなど)として有用な、軽量で高熱伝導率を有する金属基炭素繊維複合材料を得ることができる。また、本発明の方

法によれば、特に追加の工程ないし材料を必要とすることなく、金属と炭素繊維との間の反応による金属炭化物の生成を抑制することができ、より安価かつ簡便な方法で優れた特性を有する金属基炭素繊維複合材料を形成することが可能となる。さらに、本発明の金属基炭素繊維複合材料では炭素繊維が配列されているので、熱流の移動方向を炭素繊維の配列方向によって制御することができる。この特徴は、高集積化が進んだ半導体を用いた電子装置などのように隣接するデバイスへの熱の移動を抑制したい場合に特に有用である。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本発明の金属基炭素繊維複合材料の製造に用いる装置の一例を示す図である。

[図2]実施例1で得られた金属基炭素繊維複合材料の断面の光学顕微鏡写真を示す図である。

[図3]連続繊維として取り扱うことができる炭素繊維に対する金属粉末の付着に用いる装置の一例を示す図である。

符号の説明

- [0013]
- 1 容器
 - 2 ダイ
 - 3 下部パンチ
 - 4 上部パンチ
 - 5 プラテン
 - 6 プランジャ
 - 7 電源
 - 8 金属繊維混合物
 - 21 巻出ボビン
 - 22 巻取ボビン
 - 23 乾燥手段
 - 24 容器
 - 25 攪拌手段

30 繊維束

31 金属粉末懸濁液

発明を実施するための最良の形態

- [0014] 本発明の第1の実施形態は、金属と炭素繊維とを焼結させて得られる金属基炭素繊維複合材料である。この金属基炭素繊維複合材料は、詳細を後述する、固相において予め混合された金属および炭素繊維の複合体をパルス通電焼結法にて焼結させることによって得られるものである。
- [0015] 本発明に用いられる炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、あるいは、気相成長炭素繊維またはカーボンナノチューブを撚り合わせたナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーであってもよい。ピッチ系炭素繊維およびPAN系炭素繊維は、長さ数百mにわたるものが市販されており、それを所望の長さに切断して本発明に用いることができる。ナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーを用いてもよい。ピッチ系炭素繊維またはPAN系炭素繊維を用いる場合、 $5\mu\text{m}$ 〜 $20\mu\text{m}$ の直径を有する繊維が適当である。また、それら炭素繊維は、所望される複合材料の寸法にも依存するが、5mm以上、好ましくは10mm〜1mの長さで用いることができる。望ましくは、所望される複合材料の一端から他端までの長さを有する炭素繊維を用い、該炭素繊維を1方向に配列させ、該複合材料の一端から他端まで連続している炭素繊維を用いる。このように構成することが高い熱伝導性を実現する上で有効である。
- [0016] 一方、気相成長炭素繊維およびカーボンナノチューブは、100nm〜 $100\mu\text{m}$ の繊維長のものが知られている。また、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーを5mm以下（たとえば $100\mu\text{m}$ 〜5mm）の繊維長に切断して、本発明に用いてもよい。これらの繊維を用いる場合、100nm〜5mmの長さの不連続の短繊維が金属マトリクス中に分散されている金属基炭素繊維複合材料が得られる。特定の用途においては、このような不連続の短繊維を用いても、該繊維を2次元的に配列させることによって十分な熱伝導性が得られる。繊維が2次元的に配列された状態とは、個々の繊維の向きが直交座標系の3軸の内の2つの軸（たとえばx軸、y軸）については無秩序であるが、他の1軸（たとえばz軸）の方向には

向いていないことを意味する。繊維の向きがz軸に向いていない場合、xy平面が熱の易伝導平面となる。

[0017] 前述の5mm以上の長さを有する長繊維と、前述の100nm～5mmの長さの不連続の短繊維とを混合して用いてもよい。この場合には、容易に1方向に配列することが可能な長繊維が形成する間隙に短繊維が介在する構造の複合材料が得られ、短繊維を1方向に配列させることが容易となり、該配列方向において高い熱伝導性を実現することが可能となる。

[0018] 本発明に用いる金属は、高い熱伝導性を有する金属であり、アルミニウム、アルミニウムの合金、銅、銅の合金、マグネシウムまたはマグネシウムの合金を含む。熱伝導性を高くすることが第一義的目的である場合、銅またはその合金を用いることができる。あるいはまた、軽量であることが第一義的目的である場合、より小さい密度を有するアルミニウム、アルミニウムの合金、マグネシウムまたはマグネシウムの合金を用いることができる。特に、 2.6 g/cm^3 以下の密度を有する金属基炭素繊維複合材料を作製する場合、アルミニウム、アルミニウムの合金、マグネシウムまたはマグネシウムの合金を用いることが有利である。後述するように、本発明の金属基炭素繊維複合材料を形成する際に、金属を炭素繊維表面に付着させる。これを実施するために、該金属は、平均粒径10nm～100 $\mu\text{ m}$ 、好ましくは10nm～50 $\mu\text{ m}$ の粉末として用いられる。

[0019] 本発明の金属基炭素繊維複合材料は、該複合材料の総質量を規準として10～80質量%、好ましくは30～80質量%、より好ましくは50～80質量%の炭素繊維を含む。そして、本発明の金属基炭素繊維複合材料は、理想密度の70%以上、好ましくは90%～100%の相対密度を有する。本発明における理想密度とは、炭素繊維が金属のマトリクス中に空隙なしに充填されたと仮定した場合に、用いた炭素繊維および金属の密度、ならびに炭素繊維と金属との組成比から計算される密度を意味する。金属基炭素繊維複合材料が前述の範囲内の組成および密度を有することによって、材料中に空隙が存在してもよいにもかかわらず、該複合材料が炭素繊維配列方向において300W/mK(ワット毎メートル毎ケルビン)の熱伝導率を有することが可能となる。なお、本発明における「繊維配列方向」とは、繊維長が5mm以上の長繊維が1方

向に配列されている場合にはその繊維の軸方向を意味し、100nm～5mmの長さの短繊維が2次元的に配列されている場合には、熱の易伝導平面の方向を意味する。

[0020] さらに、用いる金属の種類および炭素繊維の組成比を最適化することによって、本発明の金属基炭素繊維複合材料は、金属としてアルミニウムまたはその合金を用いた場合、 $2.6\text{g}/\text{cm}^3$ 以下、好ましくは $2.2\text{--}2.6\text{g}/\text{cm}^3$ 、より好ましくは $2.2\text{--}2.5\text{g}/\text{cm}^3$ の密度を有することが望ましい。金属としてマグネシウムまたはその合金を用いた場合、 $2.1\text{g}/\text{cm}^3$ 以下、好ましくは $1.8\text{--}2.1\text{g}/\text{cm}^3$ 、より好ましくは $1.9\text{--}2.1\text{g}/\text{cm}^3$ の密度を有することが望ましい。このように低い密度を有する複合材料は、軽量の放熱部材(基板、ヒートシンク、ヒートスプレッダなど)を形成する際に有用である。また、高い熱伝導性を目的として金属として銅またはその合金を用いた場合、本発明の金属基炭素繊維複合材料は、 $6.8\text{g}/\text{cm}^3$ 以下、好ましくは $2.5\text{--}6.8\text{g}/\text{cm}^3$ 、より好ましくは $2.5\text{--}4.6\text{g}/\text{cm}^3$ の密度を有することが望ましい。

[0021] 本発明の金属基炭素繊維複合材料は、半導体を用いた電子装置またはパワーモジュールの放熱部材(基板、ヒートシンク、ヒートスプレッダなど)として有用である。半導体を用いた電子装置は、たとえば中央処理装置(CPU)、記憶素子(メモリ)、各種装置のコントローラIC、フラットパネルディスプレイ装置、画像処理装置、通信装置(無線および有線)、光電ハイブリッド回路など当該技術において知られている任意のものであってもよい。パワーモジュールは、サイリスタ、GTO、IGBT、IEGTなどの素子を用いたコンバータ、インバータなどを含む。また、本実施形態の金属基炭素繊維複合材料では炭素繊維が配列されているので、熱流の移動方向を炭素繊維の配列方向によって制御することができる。この特徴は、高集積化が進んだ半導体を用いた電子装置などのように隣接するデバイスへの熱の移動を抑制したい場合に特に有用であり、たとえば炭素繊維を冷却対象のデバイスから装置の上方へ向けて配列させて、専ら装置の上方への熱流の移動を可能にすることができる。本発明の金属基炭素繊維複合材料をヒートシンクまたはヒートスプレッダのような放熱部材として用いる場合、該材料は適当な形状に加工されて、これらの装置において発生する熱を、中間的ないし最終的な冷媒へと輸送するように取り付けられる。この際に、本発明の複合材料およびそれら装置の接合部において、それぞれの表面の凹凸を充填するた

めの柔軟な伝熱媒体(たとえば、銀などの高熱伝導性粒子を分散させてもよいシリコーングリース、熱伝導シートなど)を用いて、装置から複合材料への均一な熱伝導を達成してもよい。

[0022] 以下、本発明の金属基炭素繊維複合材料の製造方法について詳細に説明する。本発明の製造方法の第1の工程は、金属粉末と炭素繊維とを固体状態で混合して、炭素繊維表面に金属が付着した金属繊維混合物を形成する工程である。

[0023] 繊維長が5mm以上の長繊維(ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維またはナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤー)を用いる場合、引き続き金属繊維混合物の配列工程を容易にするために、本工程を、炭素繊維の繊維方向を保持することが可能な物理的混合法によって実施することが望ましい。この場合には、適当な径の棒状の粉砕媒体を用いてもよいロッドミルを用いて本工程を実施することができる。本工程において用いるロッドミルは、炭素繊維が捩れたり、互いに絡み合ったりしないように、十分に小さな内径を有することが望ましく、好ましくは10mm〜20mmの内径を有することが望ましい。

[0024] 繊維長が100nm〜5mmの長さの短繊維(気相成長炭素繊維またはカーボンナノチューブ)を用いる場合、ボールミル、ロールミル、高速回転ミルなどによる物理的混合法を用いて本工程を実施することができる。なお、本工程においては、予め別途粉砕して前述のような粒径を有する金属粉末を用いてもよいし、より大きな粒径を有する金属粉末を用いて、金属粉末の粉砕と炭素繊維への付着を同時に行ってもよい。

[0025] さらに、連続繊維として取り扱うことができるピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維およびナノチューブ・ナノファイバーの撚合ワイヤーの場合、たとえば、図3に示すような装置を用いて、溶媒中に金属粉末を分散させた懸濁液にこれらの長繊維を浸漬させることで、高効率・高精度に金属粉末が付着した繊維束を得ることができる。本発明において、「連続繊維として取り扱うことができる」とは、繊維の長さが100mm以上であることを意味する。図3の装置においては、巻出ボビン21から繊維束30が巻き解き、攪拌装置25により攪拌される容器24内の金属粉末懸濁液31中に浸漬させ、金属粉末が付着した繊維束30を巻取ボビン22に巻き取る。ここで、巻取ボビン22に巻き取る前に、温風乾燥機などの乾燥手段23を用いて繊維束30上に付着した溶媒を蒸

発除去してもよい。金属粉末懸濁液31に用いることができる溶媒は、分散される金属粉末がアルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金の粉末の場合、メタノール、エタノール、プロパノール、アセトン、ヘキサン、ベンゼン、キシレン、トルエン、ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、エチルメチルエーテル、クロロホルムといった有機溶媒から選択することができる。また、銅およびこれを基とする合金の粉末を分散させる場合には、これら有機溶媒に加えて水を選択することもできる。望ましくは、金属粉末懸濁液31は、分散粘着剤としてプルロニック系分散剤（プルロニック（登録商標）F-68など）またはポリエチレングリコールなどをさらに含み、繊維束への金属粉末の均一な付着を促進させる。この方法によって得られる複合材料中の炭素繊維の含有量制御は、繊維束に対する金属粉末の付着量によって制御される。そして、金属粉末の付着量の制御は、懸濁液の粉末混合量、金属粉末懸濁液に浸漬される繊維束の長さ、金属粉末懸濁液中を通過する繊維束の速度および／または分散粘着剤濃度などを制御することによって達成することができる。

[0026] 本発明の製造方法の第2の工程は、焼結装置の治具中に金属繊維混合物（または金属粉末付着繊維束）を配列させながら充填する工程である。本発明において用いることができる焼結装置を図1に示す。図1の焼結装置は、容器1と、貫通孔を有するダイ2ならびに該貫通孔に嵌合する下部パンチ3および上部パンチ4とで構成される治具と、下部パンチ3と上部パンチ4に対して圧力を加えるプラテン5およびプランジャ6と、下部パンチ3と上部パンチ4に接続され、金属繊維混合物8に対して電流を流すための電源7とを備える。

[0027] ダイ2に下部パンチ3を嵌合させて形成される凹部に、繊維を配列させながら、金属繊維混合物8を充填する。繊維長が5mm以上の長繊維を用いる場合、充填時に繊維を配列させることが望ましい。繊維長が100nm〜5mmの長さの短繊維を用いる場合、充填時に繊維を配列させてもよいし、後述する焼結工程において焼結と同時に繊維の配列を行ってもよい。

[0028] ここで、前述の懸濁液浸漬法によって得られる金属粉末付着繊維束を用いる場合、巻取ボビンから巻き解かれた金属粉末付着繊維束を適当な長さに切断し、切断した金属粉末付着繊維束を、ダイ2および下部パンチ3から形成される凹部に配列させ

ながら充填することができる。さらに、金属粉末懸濁液中に分散粘着剤を用いた場合には、上部パンチを載置する前、あるいは上部パンチを載置後1〜10MPaの低加圧状態において、真空中または不活性雰囲気(窒素、アルゴン、ヘリウムなど)下、充填した金属粉末付着繊維束を200〜400℃の温度に加熱して分散粘着剤を除去して、金属粉末および炭素繊維からなる金属繊維混合物8を形成することが望ましい。分散粘着剤の加熱除去工程は、加熱手段をさらに備えたパルス通電焼結装置中で行ってもよいし、あるいは別個の加熱装置中で行ってもよい。なお、金属粉末として銅粉末を用いる場合には、分散粘着剤の加熱除去工程を酸化性雰囲気(空気、酸素富化空気または純酸素など)において行ってもよい。

[0029] 次に、充填された金属繊維混合物8の上に上部パンチ4を載置し、組み合わせられた治具を、容器1内のプレス機のプラテン5およびプランジャ6の間に配置し、焼結工程を実施する。焼結工程は、大気中、真空中または不活性雰囲気中で実施することが好ましい。容器1内を真空とするために、容器1は適切な真空排気系と接続される排気口(不図示)を有していてもよい。真空中で焼結工程を行う場合、容器内圧力を0〜20Pa、好ましくは0〜5Paとすることが望ましい。あるいはまた、容器1が不活性ガス導入口およびガス排出口(ともに不図示)を有して、容器1を不活性ガス(窒素、アルゴン、ヘリウムなど)でパージして不活性雰囲気を実現してもよい。

[0030] 次に、上部パンチ4をプランジャで押圧して、金属繊維混合物8に圧力を印加する。印加される圧力は、10〜100MPa、好ましくは20〜50MPaの範囲内であることが望ましい。

[0031] そして、下部パンチ3および上部パンチ4に接続される電源7を用いて、パルス状の電流を金属繊維混合物8に通電して焼結を実施する。この際に用いられる電流のパルス幅は、0.005〜0.02秒、好ましくは0.005〜0.01秒であり、電流密度(ダイ2の貫通孔の断面積を規準とする)が $5 \times 10^5 \sim 2 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ 、好ましくは $5 \times 10^6 \sim 1 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ であることが望ましい。そのような電流密度を達成するための電圧は、金属繊維混合物8を含めた導電経路の抵抗値に依存するが、通常2〜8Vの範囲内である。パルス状電流の通電は、所望される焼結が完了するまで継続され、その継続時間は複合材料の寸法、電流密度、炭素繊維の混合比などに依存して変化する。

[0032] 前述のようにパルス状電流を通電することによって、金属粒子の塑性変形および粉末間の融着が生じて焼結が進行する。本工程のようにパルス状電流を用いた場合、金属繊維混合物全体を加熱するのとは異なり金属粒子が結合を起こすべき部位に発熱が集中するので、電流のエネルギーをより効率的に利用し、より速やかに焼結を行うことが可能となる。そして、金属繊維混合物全体の温度はそれほど上昇することがなく、金属-炭素繊維間の反応による炭化物が生成しないという点において、従来の溶湯含浸法よりも有利である。したがって、コーティングなどを施されていない安価な炭素繊維を用いて、優れた特性を有する金属基炭素繊維複合材料を得ることが可能である。また、通電初期に発生するプラズマが、粉末の吸着ガスおよび酸化被膜の除去などの作用を有する点においても、通常の抵抗加熱法よりも有利である。

[0033] 繊維長が100nm〜5mmの長さの短繊維を用いる場合、この焼結段階においても繊維の配列が進行する。すなわち、パルス状電流の通電による金属粒子の焼結に伴う変形の際に、棒状粒子(短繊維)がパンチによる荷重印加方向から倒れて、荷重印加方向に垂直な面に平行方向に配列する。この際には、荷重印加方向に垂直な面が熱の易伝導平面となる。

[0034] 5mm以上の長さを有する長繊維と、100nm〜5mmの長さの不連続の短繊維とを混合して用いる場合、前述と同様の作用により、充填時に長繊維と平行に配列しなかった短繊維を、焼結工程において長繊維と平行に配列させることができる。

実施例 1

[0035] 平均粒径30 μ mのアルミニウム粉末(キシダ化学製)6gと、繊維長20cm、直径10 μ mのピッチ系炭素繊維(日本グラファイトファイバー製、YS-95A)3gと、直径5mm×長さ20mmのガラス棒とを、内径13mmのロッドミル中に配置した。ロッドミルをその軸に沿って回転させて混合を実施して、金属繊維混合物を得た。

[0036] 次に、図1に示す装置に金属繊維混合物を充填し、装置内圧力を8Paとした。本実施例においては、20×20cmの貫通孔を有するダイを用いた。ダイと下部パンチを嵌合させ、それによって形成された凹部に、炭素繊維を1方向に配列させるようにして金属繊維混合物を充填した。次に、充填された金属繊維混合物の上に上部パンチを配置し、プランジャによって25MPaの圧力を印加した。

[0037] そして、上部パンチおよび下部パンチに接続された電源を用いて、パルス幅0.01秒、電流密度 $1 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ (最高)、電圧5V(最高)のパルス状電流を20分間にわたって通電して、金属繊維混合物を焼結させ、 $20 \times 20 \times 8 \text{ cm}$ の寸法を有する金属基炭素繊維複合材料を作製した。

[0038] 得られた金属基炭素繊維複合材料は、複合材料の総重量を規準として45%の炭素繊維を含有し、 1.91 g/cm^3 の密度を有した。この材料の理想密度は、 2.40 g/cm^3 であり、相対密度は78%であった。得られた複合材料の断面の光学顕微鏡写真を図2に示す。さらに得られた複合材料の熱伝導率を測定したところ、炭素繊維配列方向において 350 W/mK の値が得られた。

実施例 2

[0039] 炭素繊維の量を4gに変更し、アルミニウム粉末の量を4gに変更したことを除いて実施例1の手順を繰り返した。得られた金属基炭素繊維複合材料は、複合材料の総重量を規準として60%の炭素繊維を含有し、 1.75 g/cm^3 の密度を有した。この材料の理想密度は、 2.38 g/cm^3 であり、相対密度は73%であった。得られた複合材料の熱伝導率を測定したところ、炭素繊維配列方向において 300 W/mK の値が得られた。

実施例 3

[0040] 本実施例は、連続繊維として取り扱うことのできる炭素繊維に対してアルミニウム粉末懸濁液を用いる懸濁液浸漬法を用いて調製した金属繊維混合物を、パルス通電焼結法によって焼結させた金属基炭素繊維複合材料を提供する。

[0041] 炭素繊維として、 1000 W/mK の熱伝導率を有する直径 $10 \mu \text{ m}$ のピッチ系炭素繊維を用い、該繊維の6000本の束を巻出ボビン2に巻きつけた。アルミニウム粉末として、 $1 \mu \text{ m}$ 以下の厚さ、および $30 \mu \text{ m}$ の面方向の平均代表長さを有する薄片状粉末を用いた。2重量%(エタノールの重量を基準とする)の分散粘着剤(プルロニック(登録商標)F68)を含むエタノール中に、アルミニウム粉末を混合して金属粉末懸濁液を形成した。アルミニウム粉末の含有量は、懸濁液の重量を基準として30重量%であった。巻出ボビンから炭素繊維束を巻き解き、攪拌されている金属粉末懸濁液に浸漬し、大気中に引き上げ、温風乾燥(50°C)して、巻取ボビンに巻き取ることに

って、アルミニウム粉末が付着した炭素繊維束を得た。

- [0042] 以上のようにして得られたアルミニウム粉末が付着した炭素繊維束を巻き解いて、20mmの長さに切断し、該繊維束を1方向に整列させた状態で、下部パンチおよびダイにより形成される20mm角の矩形状の凹部内に8g敷き詰めた。次に、装置内圧力を8Paとし、敷き詰めた繊維束の上に上部パンチを配置し、プランジャによって25MPaの圧力を印加した。そして、上部パンチおよび下部パンチに接続された電源を用いて、パルス幅0.01秒、電流密度 $5 \times 10^6 \text{ A/m}^2$ (最高)、電圧8V (最高) のパルス状電流を10分間にわたって通電して、アルミニウム粉末が付着した繊維束を焼結させ、金属基炭素繊維複合材料を得た。

- [0043] 得られた金属基炭素繊維複合材料は、50%の炭素繊維含有量で、 2.3 g/cm^3 の密度 (理想密度の95%) と 400 W/mK の熱伝導率を示した。

実施例 4

- [0044] 本実施例は、連続繊維として取り扱うことのできる炭素繊維に対して銅粉末懸濁液を用いる懸濁液浸漬法を用いて調製した金属繊維混合物を、パルス通電焼結法によって焼結させた金属基炭素繊維複合材料を提供する。

- [0045] 炭素繊維として、 1000 W/mK の熱伝導率を有する直径 $10 \mu\text{m}$ のピッチ系炭素繊維を用い、該繊維の6000本の束を巻出ボビンに巻きつけた。銅粉末として、 $1 \mu\text{m}$ 以下の厚さ、および $30 \mu\text{m}$ の面方向の平均代表長さを有する薄片状粉末を用いた。2重量% (エタノールの重量を基準とする) の分散粘着剤 (プルロニック (登録商標) F68) を含むエタノール中に、銅粉末を混合して金属粉末懸濁液を形成した。銅粉末の含有量は、懸濁液の重量を基準として60重量%であった。巻出ボビンから炭素繊維束を巻き解き、攪拌されている金属粉末懸濁液に浸漬し、大気中に引き上げ、温風乾燥 (50°C) して、巻取ボビンに巻き取ることによって、銅粉末が付着した炭素繊維束を得た。

- [0046] 以上のようにして得られたアルミニウム粉末が付着した炭素繊維束を巻き解いて、20mmの長さに切断し、該繊維束を1方向に整列させた状態で、下部パンチおよびダイにより形成される20mm角の矩形状の凹部内に12g敷き詰めた。次に、装置内圧力を10Paとし、敷き詰めた繊維束の上に上部パンチを配置し、プランジャによって2

5MPaの圧力を印加した。そして、上部パンチおよび下部パンチに接続された電源を用いて、パルス幅0.01秒、電流密度 $5 \times 10^6 \text{ A/m}^2$ (最高)、電圧8V(最高)のパルス状電流を10分間にわたって通電して、アルミニウム粉末が付着した繊維束を焼結させ、金属基炭素繊維複合材料を得た。

[0047] 得られた金属基炭素繊維複合材料は、30%の炭素繊維含有量で、 4.5 g/cm^3 の密度(理想密度の97%)と 550 W/mK の熱伝導率を示した。

請求の範囲

- [1] 金属と炭素繊維とを焼結させて得られる金属基炭素繊維複合材料であって、前記炭素繊維は前記複合材料の総質量を規準として10〜80質量%含まれ、前記複合材料は理想密度の70%以上まで焼結されていることを特徴とする金属基炭素繊維複合材料。
- [2] 前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーからなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [3] 前記金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [4] 前記金属はアルミニウムまたはそれを基とする合金であり、 $2.6\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の密度を有することを特徴とする請求項3に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [5] 前記金属は銅またはそれを基とする合金であり、 $6.8\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の密度を有することを特徴とする請求項3に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [6] 前記金属はマグネシウムまたはそれを基とする合金であり、 $2.1\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の密度を有することを特徴とする請求項3に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [7] 前記炭素繊維が配列されていることを特徴とする請求項1に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [8] 炭素繊維配列方向において $300\text{W}/\text{mK}$ 以上の熱伝導率を有することを特徴とする請求項7に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [9] 請求項1〜8のいずれかに記載の金属基炭素繊維複合材料を放熱部材として用いることを特徴とする半導体を用いた電子機器。
- [10] 請求項1〜8のいずれかに記載の金属基炭素繊維複合材料を放熱部材として用いることを特徴とするパワーモジュール。
- [11] 炭素繊維と金属の粉末とを物理的に混合して金属繊維混合物を得る工程1と、
前記金属繊維混合物を配列させながら、治具中に充填する工程2と、
前記治具を大気中、真空中または不活性雰囲気中に設置し、加圧しながら直接パルス電流を通電させ、それによる発熱で焼結をする工程3と

を特徴とする金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

- [12] 前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーからなる群から選択されることを特徴とする請求項11に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。
- [13] 前記金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択されることを特徴とする請求項11に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。
- [14] 前記炭素繊維の繊維長は100nm〜5mmであり、前記工程1は、ボールミル等の物理的混合法を用いて実施されることを特徴とする請求項11に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。
- [15] 前記炭素繊維の繊維長は5mm以上であり、前記工程1は繊維方向を保持した物理的混合法によって実施されることを特徴とする請求項11に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。
- [16] 前記炭素繊維の繊維長は100mm以上であり、前記工程1は繊維束を金属粉末懸濁液に浸漬させることによって実施されることを特徴とする請求項11に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。
- [17] 前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維またはナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーと、気相成長炭素繊維またはカーボンナノチューブとの混合物であることを特徴とする請求項11に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。
- [18] 前記工程2において、前記炭素繊維の方向を2次元的に制御したことを特徴とする請求項11に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

1/2

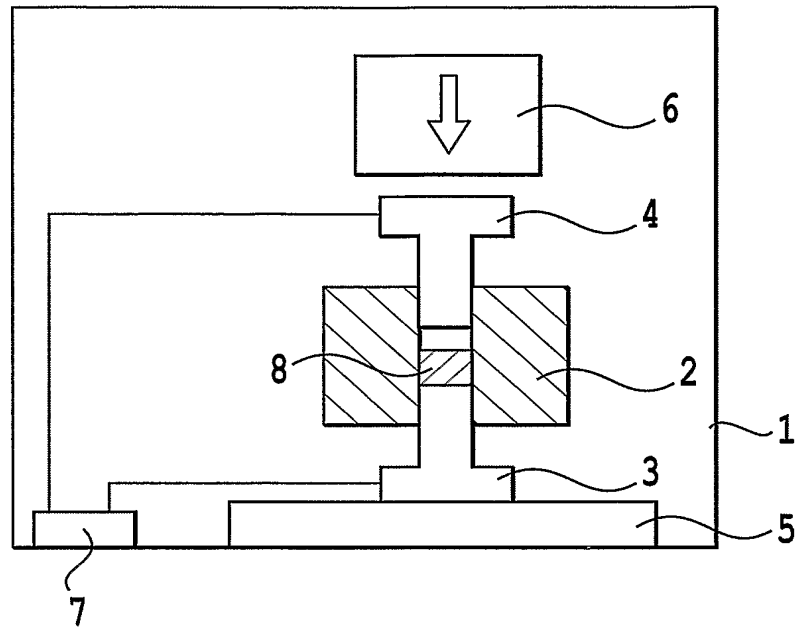


FIG.1

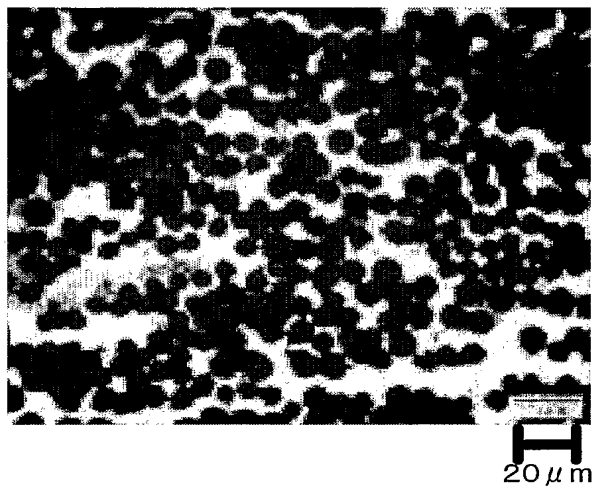


FIG.2

2/2

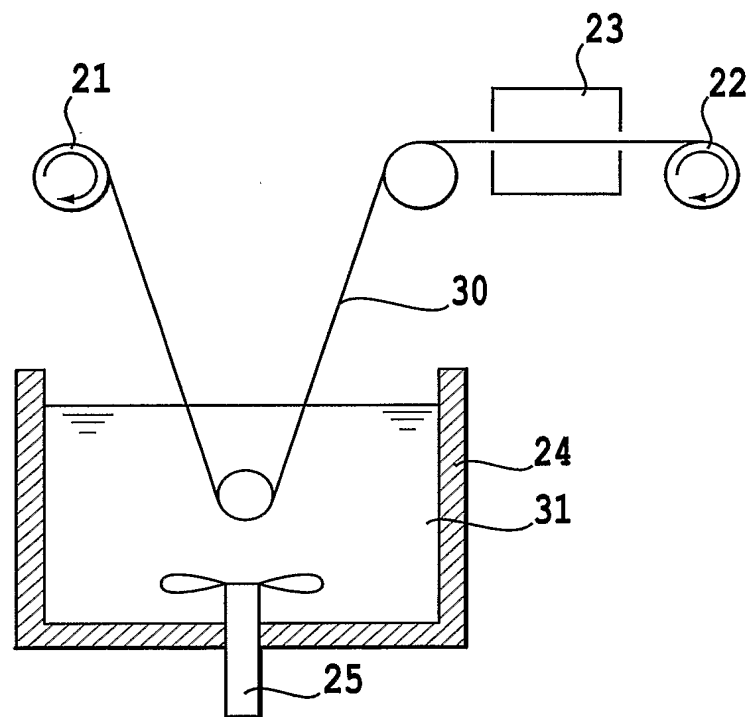


FIG.3

差替え用紙（規則 26）

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018823

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C22C49/14, C22C47/14, B22F3/14, H01L23/373

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C22C49/14, C22C47/14, B22F3/14, H01L23/373

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 11-140559 A (The Furukawa Electric Co., Ltd.), 25 May, 1999 (25.05.99), Claims; examples (Family: none)	1-3, 5, 7-10 11-18
X Y	JP 51-5213 A (Hitachi, Ltd.), 16 January, 1976 (16.01.76), Page 1, lower left column, lines 4 to 13; examples (Family: none)	1-3, 5, 9, 10 11-18
X Y	JP 4-19430 A (Akebono Research and Development Center Ltd.), 23 January, 1992 (23.01.92), Claims; examples (Family: none)	1-4, 6 11-18

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
08 March, 2005 (08.03.05)

Date of mailing of the international search report
22 March, 2005 (22.03.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018823

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 58-91141 A (Nippon Soken, Inc.), 31 May, 1983 (31.05.83), Claims; examples & US 4500360 A1	1-4 11-18
X Y	JP 52-18411 A (Komatsu Ltd.), 12 February, 1977 (12.02.77), Claims; examples (Family: none)	1-4 11-18
X Y	JP 50-140307 A (Honda Motor Co., Ltd.), 11 November, 1975 (11.11.75), Claims; page 2, upper right column, lines 7 to 15; examples (Family: none)	1-4, 7 11-18
X Y	JP 51-47508 A (Honda Motor Co., Ltd.), 23 April, 1976 (23.04.76), Claims; page 2, upper left column, line 13 to upper right column, line 1; page 3, lower right column, lines 3 to 8 (Family: none)	1-4, 7 11-18
X Y	JP 44-17007 B (Japax Inc.), 28 July, 1969 (28.07.69), Claims; column 2, line 11 to column 3, line 7; examples; column 7, lines 1 to 6 (Family: none)	1-7 11-18

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C22C49/14, C22C47/14, B22F3/14, H01L23/373

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C22C49/14, C22C47/14, B22F3/14, H01L23/373

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2005年

日本国登録実用新案公報 1994-2005年

日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 11-140559 A (古河電気工業株式会社)	1-3, 5, 7-10
Y	1999. 05. 25, 特許請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	11-18
X	J P 51-5213 A (株式会社日立製作所)	1-3, 5, 9, 10
Y	1976. 01. 16, 第1頁左下欄第4-13行, 実施例 (ファミリーなし)	11-18
X	J P 4-19430 A (株式会社曙ブレーキ)	1-4, 6
Y	1992. 01. 23, 特許請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	11-18

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 03. 2005

国際調査報告の発送日

22. 3. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

井上 猛

4 K

9 2 6 9

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P 5 8 - 9 1 1 4 1 A (株式会社日本自動車部品総合研究 所) 1 9 8 3 . 0 5 . 3 1 , 特許請求の範囲, 実施例 & U S 4 5 0 0 3 6 0 A 1	1-4 11-18
X Y	J P 5 2 - 1 8 4 1 1 A (株式会社小松製作所) 1 9 7 7 . 0 2 . 1 2 , 特許請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	1-4 11-18
X Y	J P 5 0 - 1 4 0 3 0 7 A (本田技研工業株式会社) 1 9 7 5 . 1 1 . 1 1 , 特許請求の範囲, 第2頁右上欄第7-15 行, 実施例 (ファミリーなし)	1-4, 7 11-18
X Y	J P 5 1 - 4 7 5 0 8 A (本田技研工業株式会社) 1 9 7 6 . 0 4 . 2 3 , 特許請求の範囲, 第2頁左上欄13行-右 上欄第1行, 第3頁右下欄第3-8行 (ファミリーなし)	1-4, 7 11-18
X Y	J P 4 4 - 1 7 0 0 7 B (ジャパックス株式会社) 1 9 6 9 . 0 7 . 2 8 , 特許請求の範囲, 第2欄第11行-第3欄 第7行, 実施例, 第7欄第1-6行 (ファミリーなし)	1-7 11-18